

# EUROPEAN PATENT OFFICE

## Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 2000082476  
PUBLICATION DATE : 21-03-00

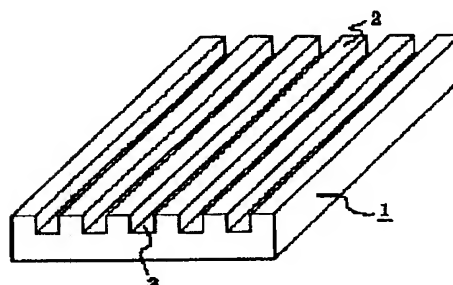
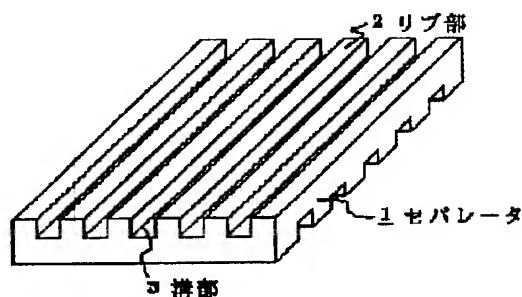
APPLICATION DATE : 07-04-99  
APPLICATION NUMBER : 11099960

APPLICANT : HITACHI CHEM CO LTD;

INVENTOR : FUJITA ATSUSHI;

INT.CL. : H01M 8/02 H01M 8/10

TITLE : FUEL CELL, FUEL CELL SEPARATOR  
AND ITS MANUFACTURE



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a separator having flexural strength equal to or more than a specific value by molding a mixture containing a fibrous substance, expanded graphite powder and a thermoset or thermoplastic resin.

SOLUTION: For this separator, it is preferable that a fibrous substance and expanded graphite powder be dispersed, the fibrous substance be formed of a carbon fiber and a cell be a solid molecule type. The separator is preferably formed by molding a mixture containing the fibrous substance, the expanded graphite powder and a thermoset or thermoplastic resin, the used resin being a phenol resin to be solidified, in response to ring-opening polymerization. By providing a separator with a structure, wherein the fibrous substance and the expanded graphite powder are dispersed in the resin, the separator that has flexural strength equal to or more than 30 MPa and a satisfactory appearance and can be produced simply and stably can be provided. Rib parts 2 and groove parts 3 are formed on the separator 1 as passages for a reaction gas on one of its surfaces or both its surfaces. For the material of the expanded graphite powder, natural graphite or the like of which crystal is highly developed is preferable.

COPYRIGHT: (C)2000,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2000-82476  
(P2000-82476A)

(43) 公開日 平成12年3月21日(2000.3.21)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

H 0 1 M 8/02  
8/10

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02  
8/10

テーマコード(参考)

B

審査請求 未請求 請求項の数8 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平11-99960

(22) 出願日 平成11年4月7日(1999.4.7)

(31) 優先権主張番号 特願平10-178678

(32) 優先日 平成10年6月25日(1998.6.25)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社  
東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72) 発明者 田代 了嗣

茨城県日立市鮎川町三丁目3番1号 日立  
化成工業株式会社山崎工場内

(72) 発明者 蓮田 春文

茨城県日立市鮎川町三丁目3番1号 日立  
化成工業株式会社山崎工場内

(74) 代理人 100071559

弁理士 若林 邦彦

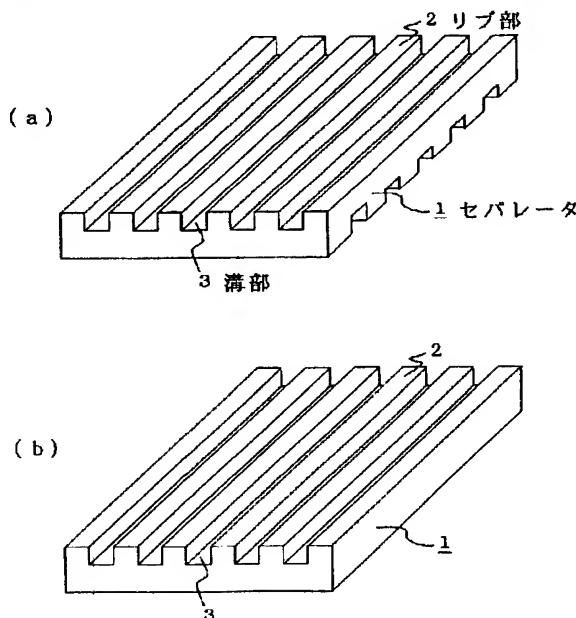
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池、燃料電池用セパレータ及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 優れたガスの不浸透性、機械強度、電気特性及び軽量化を確保し、特に機械強度に優れた、燃料電池用セパレータ、優れたガスの不浸透性、機械強度、電気特性及び軽量化を確保し、特に機械強度に優れ、外観も良好な燃料電池用セパレータを安易な工程で安価に、かつ安定に生産できる燃料電池用セパレータの製造方法並びにセパレータの優れたガスの不浸透性、機械強度、電気特性及び軽量化を確保し、特に機械強度に優れ、高性能な燃料電池を提供する。

【解決手段】 曲げ強さが3 0MPa以上である燃料電池用セパレータ、繊維状物質及び膨張黒鉛粉が樹脂中に分散されてなる燃料電池用セパレータ、繊維状物質、膨張黒鉛粉及び熱硬化性樹脂又は熱可塑性樹脂を含む混合物を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法並びに前記燃料電池用セパレータ又は前記製造方法により得られるセパレータを有してなる燃料電池。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 曲げ強さが3 MPa以上である燃料電池用セパレータ。

【請求項2】 繊維状物質及び膨張黒鉛粉が樹脂中に分散されてなる燃料電池用セパレータ。

【請求項3】 繊維状物質が炭素繊維である請求項2記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項4】 燃料電池が、固体高分子型である請求項1、2又は3記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項5】 繊維状物質、膨張黒鉛粉及び熱硬化性樹脂又は熱可塑性樹脂を含む混合物を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項6】 使用する樹脂が、開環重合により硬化反応するフェノール樹脂である請求項5記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項7】 請求項1、2、3若しくは4に記載されるか又は請求項5若しくは6に記載される製造方法により得られるセパレータを有してなる燃料電池。

【請求項8】 固体高分子型である請求項7記載の燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、機械強度に優れた燃料電池、燃料電池用セパレータ及びその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来、燃料電池用セパレータは、黒鉛板を加工し不浸透化する方法やまた膨張黒鉛粉と樹脂を混合、成形して製造されていた。しかし、前記の黒鉛板を使用して燃料電池用セパレータを製造する場合、黒鉛板の機械強度が小さいため、薄く切削加工する工程でクラックが発生してしまい、また黒鉛粉などの導電材料と樹脂を混合した成形材料では、成形作業の脱形時に強度不足によりセパレータが破壊してしまう欠点を有していた。

【0003】これらを解決する方法として、粒子径の大きなりん片状黒鉛の使用や金属線の併用が考えられるが、りん片状黒鉛と樹脂の混合物を使用した場合、成形性が悪化し、電気抵抗が高くなる傾向がある。また、膨張黒鉛粉と金属線及び樹脂混合物の成形体の場合、膨張黒鉛粉に含まれる酸成分によって、金属線が酸化され電気抵抗が高くなる問題があった。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】請求項1、2、3及び4記載の発明は、上記問題を解決するものであり、燃料電池セパレータにおいて、優れたガスの不浸透性、機械強度、電気特性及び軽量化を確保し、特に機械強度に優れた、燃料電池用セパレータを提供するものである。また、請求項5及び6記載の発明は、優れたガスの不浸透性、機械強度、電気特性及び軽量化を確保し、特に機械

強度に優れ、外観も良好な燃料電池用セパレータを安易な工程で安価に、かつ安定に生産できる燃料電池用セパレータの製造方法を提供するものである。また、請求項7及び8記載の発明は、セパレータの優れたガスの不浸透性、機械強度、電気特性及び軽量化を確保し、特に機械強度に優れ、高性能な燃料電池を提供するものである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明は、曲げ強さが3 MPa以上である燃料電池用セパレータに関する。また、本発明は、繊維状物質及び膨張黒鉛粉が樹脂中に分散されてなる燃料電池用セパレータに関する。また、本発明は、前記の繊維状物質が炭素繊維である燃料電池用セパレータに関する。また、本発明は、燃料電池が、固体高分子型である前記の燃料電池用セパレータに関する。

【0006】また、本発明は、繊維状物質、膨張黒鉛粉及び熱硬化性樹脂又は熱可塑性樹脂を含む混合物を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法に関する。また、本発明は、使用する樹脂が、開環重合により硬化反応するフェノール樹脂である前記の燃料電池用セパレータの製造方法に関する。また、本発明は、前記のセパレータ又は前記の製造方法により得られるセパレータを有してなる燃料電池に関する。さらに、本発明は、固体高分子型である前記の燃料電池に関する。

## 【0007】

【発明の実施の形態】本発明の燃料電池用セパレータは、繊維状物質及び膨張黒鉛粉が樹脂中に分散した構造をとることにより、優れた機械特性及びその他の要求特性を達成することができる。膨張黒鉛粉の原料となる黒鉛としては、天然黒鉛、キッシュ黒鉛、熱分解黒鉛等の高度に結晶が発達した黒鉛が好ましいものとして挙げられる。得られる特性と経済性のバランスを考慮すると、天然黒鉛が好ましい。用いる天然黒鉛としては、特に制限はなく、F48C（日本黒鉛(株)製、商品名）、H-50（中越黒鉛(株)製、商品名）等の市販品を用いることができる。

【0008】前記黒鉛を膨張黒鉛にする方法に特に制限はなく、公知の方法としては、硫酸、硝酸又は前記混合液の酸成分に過酸化水素を添加したものに、黒鉛を浸漬して黒鉛層間化合物を生成させ、次いで、水洗してから急速加熱して、黒鉛結晶のC軸方向を膨張処理する方法が挙げられる。これにより、膨張した黒鉛が虫状形となり方向性のない複雑に絡み合った形態となる。

【0009】膨張黒鉛粉の製造は、前記膨張黒鉛を、密度が0.6 g/cm<sup>3</sup>～1.8 g/cm<sup>3</sup>、好ましくは0.7 g/cm<sup>3</sup>～1.7 g/cm<sup>3</sup>になるようにロール、プレス等で加圧してシート状に加工し膨張黒鉛同士との接触を更に大きくし、粉碎、分級して製造される。密度が0.6 g/cm<sup>3</sup>未満のシートを使用した場合、電気特性の向上があまり認め

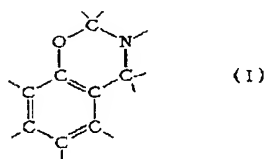
められず、また1.8g/cm<sup>3</sup>を超えるシートを使用した場合、製造時に大きな圧力が必要となり、作業性及び生産性が低下する傾向にある。

【0010】また、膨張黒鉛粉の平均粒径に特に制限はないが、粉末樹脂との乾式混合を考慮すると、25μm以上であることが好ましく、25μm～500μmの範囲であることがより好ましく、25μm～300μmの範囲であることがさらに好ましく、25μm～200μmの範囲であることが最も好ましい。平均粒径が25μm未満の膨張黒鉛粉を使用した場合、成形したセパレータの機械的強度が低下する傾向にある。

【0011】本発明において、前記膨張黒鉛粉と共に用いられる樹脂としては、粉状の熱硬化性樹脂又は熱可塑性樹脂があり、その構造に特に制限はなく、例えば、固形エポキシ樹脂、メラミン樹脂、アクリル樹脂、レゾールタイプ、ノボラックタイプ等の各種フェノール樹脂、ポリアミド樹脂、粉状ポリアミドイミド樹脂、フェノキシ樹脂等が使用される。これらの樹脂は必要に応じて、硬化剤、硬化促進剤、硬化触媒等を併用することができる。例えば、エポキシ樹脂は、硬化剤と硬化促進剤が併用して使用される。これらの樹脂の中で、優れた特性バランスを示し、経済性、作業性等にも優れることから、フェノール樹脂が好ましい。

【0012】フェノール樹脂としては、硬化反応時に発生ガスが少なく、成形性が良くまた良好な諸特性を有する開環重合により硬化反応するフェノール樹脂が特に好ましいものとして用いられる。開環重合により硬化するフェノール樹脂としては、粉末状の樹脂が好ましく、一般式(1)

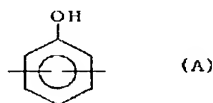
【化1】



に示されるジヒドロベンゾオキサジン環を含む樹脂が成形性、耐熱性等に優れ、好ましい。この樹脂は、加熱により開環重合反応を起こし、触媒や硬化剤を用いることなく、揮発分を発生させることなく優れた特性を持つ架橋構造を形成することができる。

【0013】前記ジヒドロベンゾオキサジン環を含む樹脂としては、一般式(A)

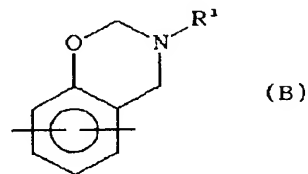
【化2】



(式中、芳香環に結合する水素はヒドロキシル基のオルト位の1つを除き、置換基で置換されていてもよい)に

示す化学構造単位と一般式(B)

【化3】



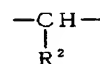
(式中、R<sup>1</sup>は炭化水素基であり、芳香環に結合する水素は、置換基で置換されていてもよい)に示す化学構造単位を含むものが揮発性ガスの発生を抑制する効果が高いので好ましく、一般式(A)/一般式(B)のモル比が4/1～1/9で含むものが耐熱性等の点でより好ましい。なお、この比は、用いる材料の比率等により調整できる。

【0014】上記一般式(A)及び一般式(B)で示される化学構造単位において、芳香環に結合する水素の代わりに置換されていてもよい置換基としては特に制限はないが、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基などの炭素原子数1～10のアルキル基が好ましいものとして挙げられる。また、一般式(A)において、ヒドロキシル基のオルト位の1つは硬化反応のために水素を持つ。さらに、一般式(B)において、R<sup>1</sup>で示される炭化水素基としては、メチル基、エチル基、シクロヘキシル基、フェニル基、置換フェニル基等の炭素原子数1～10のものが挙げられる。

【0015】前記各化学構造単位の数は、1分子中に含まれる一般式(A)の数をm、一般式(B)の数をnとすると、mが1以上、nが1以上であればよいが、数平均でm+nが3～10であることが、硬化物の特性、例えば耐熱性等の点で好ましい。

【0016】上記各化学構造単位は、互いに直接結合していてもよく、各種の基を介して結合していてもよい。前記の基としては、有機基として、アルキレン基、キシリレン基等の炭化水素基などが好ましいものとして挙げられ、具体的には、

【化4】



で示される基(但し、R<sup>2</sup>は、水素原子又はメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、フェニル基、置換フェニル基等の炭素原子数1～20の炭化水素基を示す)、炭素原子数5～20の鎖状アルキレン基などが挙げられる。これは、原料として用いるフェノール性水酸基を有する化合物の種類等により選択できる。

【0017】前記ジヒドロベンゾオキサジン環を含む樹脂は、例えば、フェノール性水酸基を有する化合物、ホルムアルデヒド類及び第1級アミンから合成することができる。これらの材料からジヒドロベンゾオキサジン環を含む樹脂を合成する方法としては、フェノール性水酸

基を有する化合物と第1級アミンとの混合物を好ましくは70℃以上に加熱したホルムアルデヒド類中に添加して、好ましくは70℃～110℃、より好ましくは90℃～100℃で、好ましくは20分～120分反応させ、その後好ましくは120℃以下の温度で減圧乾燥する方法が挙げられる。

【0018】前記フェノール性水酸基を有する化合物としては、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノール等のビスフェノール化合物、トリスフェノール化合物、テトラフェノール化合物などの低分子フェノール化合物や、フェノール樹脂を挙げることができる。フェノール樹脂としては、フェノール若しくはキシレノール、メーブチルフェノール、オクチルフェノール等のアルキルフェノールなどの1価のフェノール化合物、レゾルシノール、ビスフェノールA等の多価フェノール化合物とホルムアルデヒド類を反応させて得られるノボラック樹脂若しくはレゾール樹脂、フェノール変性キシレン樹脂、メラミン変性フェノール樹脂、ポリブタジエン変性フェノール樹脂等が挙げられる。

【0019】前記ホルムアルデヒド類としては、ホルムアルデヒドの他、ホルマリン、パラホルムアルデヒドやヘキサメチレンテトラミンのようなホルムアルデヒドを発生するものを用いることもできる。第1級アミンとしては、メチルアミン、シクロヘキシルアミン等の脂肪族アミン、アニリン、置換アニリン等の芳香族アミンが挙げられる。耐熱性の面からは、芳香族アミンが好ましい。

【0020】これらの配合比に特に制限はないが、例えば、フェノール性水酸基を有する化合物のヒドロキシル基（そのオルト位の少なくとも1つが水素であるもの）1モルに対し、第1級アミンを0.2～0.9モル、ホルムアルデヒド類を第1級アミンの2倍モル量以上の比で反応させることが好ましい。

【0021】粉末状のフェノール樹脂を用いる場合、その粒度分布に特に制限はないが、膨張黒鉛粉等の炭素材料との混合性（特にドライブレンド法の場合）、成形時に於ける樹脂の流れ性を考慮すると、数平均粒径で1μm～100μmが好ましく、5μm～50μmが特に好ましい。

【0022】本発明で使用する繊維状物質に制限はないが、機械強度、電気特性を考慮すると炭素繊維が好ましく、特に短繊維状炭素繊維が好ましい。短繊維状炭素繊維は、市販の短繊維や炭素繊維織物、組紐、フェルト等を短繊維化したものが使用される。また、バインダーを含浸した短繊維状炭素繊維も使用できる。

【0023】短繊維状炭素繊維の種類に特に制限はないが、平均直径が3μm～20μm及び平均長さが3mm～15mmの短繊維が好ましい。直径が3μm未満又は繊維長さが3mm未満の短繊維を使用した場合、機械強度の向上効果が図1にくくなり、一方、直径が20μmを超え

る又は繊維長さが15mmを超える短繊維を使用した場合は、成形性が悪化する傾向にある。

【0024】前記のような短繊維としては、例えば市販品であるS-231、S-232、S-233、S-234、S-331、S-332、S-333、S-334（以上、ドナック（株）製、商品名）、A-6000、A-9000、S-3000（以上、旭化成カーボンファイバー（株）製、商品名）などがある。

【0025】使用する膨張黒鉛粉と繊維状物質の配合は、膨張黒鉛粉／繊維状物質＝90／10～50／50（重量比）の範囲が好ましい。ここで混合する繊維状物質の配合量が10重量部未満（即ち前記重量比で90／10を超える）場合、機械強度の向上が得られにくくなり、一方、配合量が50重量部を超える（即ち前記重量比で50／50を下回る）場合、成形性が低下する傾向にある。

【0026】また、前記の膨張黒鉛粉と繊維状物質の総量と、前記樹脂との配合割合は、膨張黒鉛粉と繊維状物質の総量／樹脂＝85／15～55／45（重量比）の範囲で使用する事が好ましい。ここで混合する膨張黒鉛粉と繊維状物質の総量が85／15を超える場合、機械的強度が低下する傾向があり、一方、55／45未満の場合、導電性が低下する傾向がある。

【0027】膨張黒鉛粉、繊維状物質及び樹脂の混合方法に特に制限はなく、樹脂が粉末状の場合、粉末樹脂を溶媒に溶解して、膨張黒鉛粉と繊維状物質の混合物を配合し良く混合し、脱溶媒（使用樹脂の反応が進行しない条件下）後、得られた混合体を最適な大きさに粉碎、分級する方法や膨張黒鉛粉、繊維状物質及び樹脂を一度に配合し、乾式で混合する方法（シエイカー、ミキサー等で溶媒なしで混合する方法）などを用いることができる。コスト及び作業性を考慮すると乾式混合法が好ましい。

【0028】得られた上記混合物は、そのまま又は作業性向上のため予備成形（混合物の体積を減少させるため、樹脂が熔融又は硬化しない温度、例えば室温で成形）し、その後、熱成形することができる。前記熱成形は通常の圧縮成形で行うことができ、例えば、140℃～200℃に昇温したセパレータ成形用金型に、上記混合物を充填し圧力を加えたまま成形することができる。なお、成形方法としては、所望のセパレータの形状の金型等を使用する方法が直接にセパレータを成形できるので好ましいが、予め大きめの成形体を作成し、これを切削して所望の形状と大きさのセパレータにすることもできる。

【0029】本発明になる燃料電池用セパレータの大きさ、厚さ、形状等に特に制限はない。図1に、本発明の燃料電池用セパレータの一例の斜視図を示す。一般に、燃料電池用セパレータ1には、反応ガスの流路を確保するため、図1に示されるようなリブが設けられている。

2はリブ部、3は溝部である。図1の(a)は両面にリブが設けられているものであり、(b)は片面にリブが設けられているものである。

【0030】また、本発明にな燃料電池用セパレータは、固体高分子型、固体酸化物型、熔融炭酸塩型、アルカリ水溶液型、酸水溶液型等種々の型式の燃料電池用セパレータとして使用可能である。さらに、本発明にな燃料電池用セパレータは、曲げ強さが30MPa以上、好ましくは35MPa以上、さらに好ましくは40MPa以上とされ、30MPa未満であると機械強度が低下する。

【0031】燃料電池は、一般に、電解質層をはさんで燃料極及び空気極の各電極層が存在し、その両側から挟むセパレータを単位とするセルを含む。電解質としては、アルカリ水溶液型の場合は水酸化カリウム等が用いられ、酸水溶液型の場合はリン酸等が用いられ、固体高分子型の場合はイオン交換膜等が用いられ、熔融炭酸塩型の場合は炭酸リチウム等が用いられ、固体酸化物型の場合は安定化ジルコニア等が用いられる。電極の基材としては、カーボン繊維等のカーボン材などが挙げられ、必要に応じて、白金、パラジウム、銀、ニッケル等の触媒層を表面に設けたものが用いられる。燃料ガスである水素、炭化水素等は、水の分解物や天然ガス、石油、石炭、メタノール等の原料を必要に応じて水等と反応させて水素リッチな改質ガスを取り出し、これを用いることにより供給される。本発明のセパレータは中でも、固体高分子型燃料電池用として、特に好適である。

【0032】図2に固体高分子型燃料電池の一例のセルの構造を表す斜視図を示す。電池の反応を起こす最小単位のセル4は、固体高分子電解質膜5、燃料極6、空気極7の各層から構成される3層膜8と、それを両側から挟むセパレータ9a、9bにより構成されている。このように構成されたセル3が図1に示すように数段積み重ねられ、集合体としてのセルスタック10が得られる。

#### 【0033】

【実施例】次に本発明の実施例を説明する。

#### 実施例1

##### (1) 膨張黒鉛粉の製造

硫酸(濃度99重量%)600gと硝酸(濃度99重量%)200gを3リットルのガラスビーカーに入れた。このものに黒鉛F48C(固定炭素99重量%以上、日本黒鉛(株)製、商品名)400gを配合し、ガラスはねを取り付けた攪拌モータ(60rpm)で6分間攪拌し、その後、過酸化水素(濃度35重量%)32gを配合し、15分間攪拌した。攪拌終了後、減圧ろ過で酸化黒鉛と酸成分を分離し、得られた酸化黒鉛を別容器に移し、5リットルの水を加え、10分間攪拌し、減圧ろ過で洗浄酸化黒鉛と洗浄水を分離した。

【0034】得られた洗浄酸化黒鉛をホーロー製のバットに移し平らに均し、120℃に昇温した乾燥器で1時間熱処理して水分を除去した。このものを更に850℃

にの昇温した加熱炉に5分間入れ、密度が0.015g/cm<sup>3</sup>の膨張黒鉛を得た。この膨張黒鉛をロールで圧延して密度が1.0g/cm<sup>3</sup>のシートに加工し、得られたシートを粗粉碎機(ホソカワミクロン(株)製、ロートプレックス(商品名))で粉碎後、微粉碎機(奈良機械製作所(株)製、自由粉碎機M-3(商品名))で粉碎し、平均粒径が130μmの膨張黒鉛粉を得た。

【0035】(2) 開環重合するフェノール樹脂(ジヒドロベンゾオキサジン環を含む樹脂)の製造  
フェノール1.9kg、ホルマリン(37重量%水溶液)1.0kg及びしゅう酸4gを5リットルのフラスコに仕込み、環流温度で6時間反応させた。引き続き、内部を6666.1Pa(50mmHg)以下に減圧して未反応のフェノール及び水を除去し、フェノールノボラック樹脂を合成した。得られた樹脂は、軟化点84℃(環球法)、3核体～多核体/2核体比92/18(ゲルパーミエーションクロマトグラフィー法によるピーク面積比)であった。

【0036】次に合成したフェノールノボラック樹脂1.7kg(ヒドロキシル基16モルに相当)をアニリン0.93kg(10モルに相当)と混合し、80℃で5時間攪拌し、均一な混合溶液を調製した。ついで5リットルフラスコ中に、ホルマリン1.62kgを仕込み90℃に加熱し、さらに前記のノボラック/アニリン混合溶液を30分かけて少しずつ添加した。添加終了後、30分間、環流温度に保ち、しかる後に100℃で2時間6666.1Pa(50mmHg)以下に減圧して縮合水を除去し、反応し得るヒドロキシル基の71モル%がジヒドロベンゾオキサジン化されたジヒドロベンゾオキサジン環を含む樹脂を得た。すなわち、上記ジヒドロベンゾオキサジン環を含む樹脂は、前記一般式(A)と一般式(B)のモル比を前者/後者で1/2.45で含むものである。

【0037】なお、前記フェノールノボラック樹脂において反応し得るヒドロキシル基の量は、下記のようにして算出したものである。すなわち、前記フェノールノボラック樹脂1.7kg(ヒドロキシル基16モルに相当)をアニリン1.4kg(16モルに相当)及びホルマリン2.59kgと反応させ、反応し得るヒドロキシル基のすべてにジヒドロベンゾオキサジン環が導入された樹脂を合成した。過剰のアニリン及びホルマリンは乾燥中にのぞかれ、収量は3.34kgであった。このことから、前記フェノールノボラック樹脂において、反応し得るヒドロキシル基の量は14モル反応し、ジヒドロベンゾオキサジン環化したことを示している。前記で得た樹脂を、粉碎機で微粉化し、反応時発生するガスの少ない粉末フェノール樹脂を製造した。

【0038】(3) 燃料電池用セパレータの製造  
前記の(1)で製造した膨張黒鉛粉39.2g、短繊維状炭素繊維A-6000(旭化成カーボンファイバー

(株)製、商品名、平均直径7 $\mu$ m、平均長さ6mm) 16.8g(膨張黒鉛粉/短繊維炭素繊維(重量比)=70/30)及び前記の(2)で製造した開環重合により反応するフェノール樹脂24g(炭素成分/樹脂=70/30)を、ビニール袋に計り取り空気を入れて袋を膨らませた状態で約1分間乾式混合を行った。

【0039】前記混合粉を、180℃に昇温した燃料電池用セパレータ成形金型に充填し、成形温度180℃及び成形圧力(ゲージ圧:40kg/cm<sup>2</sup>)の条件で10分間成形し、片面に2mm(高さ)のリブ状突起物を形成した縦140mm及び横180mmの燃料電池用セパレータを得た。このものを厚さ3mmの鉄板2枚で挟み、200℃に昇温した乾燥器に入れ60分間熱処理した。

【0040】実施例2  
実施例1(1)で製造した膨張黒鉛粉を44.8g及び実施例1で用いた短繊維炭素繊維A-6000を11.2g(膨張黒鉛粉/短繊維炭素繊維=80/20)使用した以外は、実施例1(3)と同様の工程を経て燃料電池用セパレータを作製した。

#### 【0041】実施例3

実施例1(1)で製造した膨張黒鉛粉を50.4g及び実施例1で用いた短繊維炭素繊維A-6000を5.6g(膨張黒鉛粉/短繊維炭素繊維=90/10)使用した以外は、実施例1(3)と同様の工程を経て燃料電池用セパレータを作製した。

#### 【0042】比較例1

実施例1(1)で製造した膨張黒鉛粉を56gとし、短繊維炭素繊維を全く用いなかった以外は、実施例1(3)と同様の工程を経て燃料電池用セパレータを作製した。

#### 【0043】評価

上記実施例1、2、3及び比較例1で作製した燃料電池用セパレータの外観、成形性及び各セパレータのリブ部を平らに研磨し厚さ1.5mmの平板を作製し、曲げ強さについて評価した。その結果を表1に示す。

#### 【0044】

【表1】

表 1

	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1
外 観	○	○	○	○
成 形 性 (金型からの離型性)	○	○	○	×
曲 げ 強 さ (MPa)	58	47	40	25

\*外観(成形性): 表面状態を目視判定した。平滑で良好なものを○、表面が荒れているなどして不良なものを×とした。  
成形性: 良好なものを○、一部カケが発生したものを×として表した。  
曲げ強さ: オートグラフ((株)島津製作所製、AG-5000B)を使用し、スパンを20mmに設定し、幅20mm、厚さ1.5mmの試料を用いて、1mm/1分(23℃)の速度で試験(23℃)を行い曲げ強さを算出した。

#### 【0045】

【発明の効果】請求項1、2、3及び4記載の燃料電池用セパレータは、燃料電池セパレータにおいて、優れたガスの不浸透性、機械強度、電気特性及び軽量化を確保し、特に機械強度に優れたものである。また、請求項5及び6記載の燃料電池用セパレータの製造方法によれば、優れたガスの不浸透性、機械強度、電気特性及び軽量化を確保し、特に機械強度に優れ、外観も良好な燃料電池用セパレータを安易な工程で安価に、かつ安定に生産できる。また、請求項7及び8記載の燃料電池は、セパレータの優れたガスの不浸透性、機械強度、電気特性及び軽量化を確保し、特に機械強度に優れ、高性能なものである。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の燃料電池用セパレータの一例を示す斜

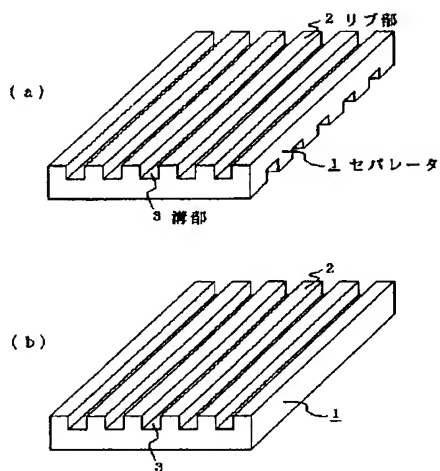
視図であり、(a)は両面にリブが存在するもの、(b)は片面にリブが存在するものである。

【図2】本発明の燃料電池の一例を示す斜視図である。

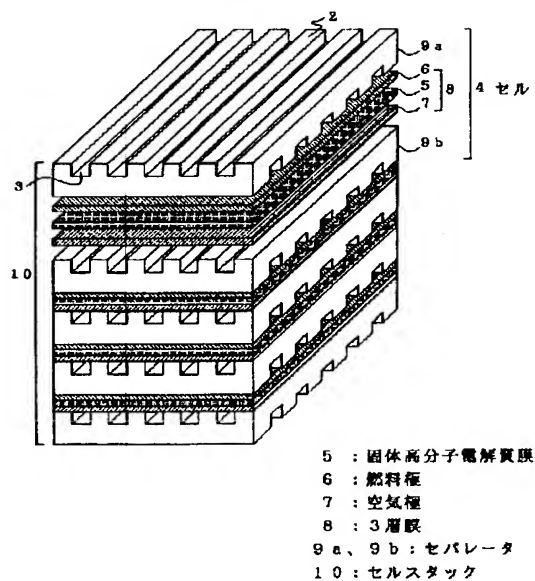
#### 【符号の説明】

- 1 セパレータ
- 2 リブ部
- 3 溝部
- 4 セル
- 5 固体高分子電解質膜
- 6 燃料極
- 7 空気極
- 8 3層膜
- 9a、9b セパレータ
- 10 セルスタック

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 関 智憲  
茨城県日立市鮎川町三丁目3番1号 日立  
化成工業株式会社山崎工場内

(72)発明者 藤田 淳  
茨城県日立市鮎川町三丁目3番1号 日立  
化成工業株式会社山崎工場内